

# Zusammenfassung

Die Zahl der experimentellen Ladungsdichtebestimmungen hat in den letzten Jahren stark zugenommen. Dies liegt vor allem an der immer größeren Verbreitung von Flächendetektoren zur Messung der für die Methode erforderlichen hochaufgelösten Röntgenbeugungsdatensätze. Außerdem liegt mit dem Programmpaket XD ein Computerprogramm vor, das es dem Nutzer ermöglicht, leicht Einfluß auf die wesentlichen Parameter im Hansen-Coppens-Multipolformalismus zu nehmen. Durch die Kombination der Flächendetektionstechnik und den in ihrer Primärstrahlintensität sehr intensiven Synchrotronstrahlungsquellen eröffnen sich für diese Methode immer weitere Anwendungsmöglichkeiten in allen Bereichen der Chemie.

In dieser Arbeit wurden drei unterschiedliche Aspekte der Methode untersucht. Mit der Ladungsdichtestudie an Thioprolin konnten bessere Parameter für die Beschreibung der radialen Ausdehnung des asphärischen Valenzterms von Schwefel gefunden werden. Schwefel gilt, neben Phosphor und Chlor, als das Element, das bei Multipolverfeinerungen aufgrund seiner sehr diffusen Ladungsverteilung Probleme bereitet. Deshalb wurde, ausgehend von Datensätzen aus Röntgenbeugungsexperimenten bei 15 K und 120 K und theoretischen Strukturparametern aus quantenchemischen Rechnungen, eine systematische Studie zur Verbesserung der Radialparameter durchgeführt. Die topologische Analyse der Kohlenstoff-Schwefelbindungen und der Vergleich der Ergebnisse mit denen aus der Studie an zwei Penicillinderivaten und den verfügbaren Literaturwerten zeigen, daß trotz der Verbesserungen durch die radialen Parameter für diese Bindungen im Rahmen des Multipolmodells noch immer gewisse Unsicherheiten auftreten.

In der Ladungsdichtestudie an zwei Penicillinderivaten, dem aktiven Penamecillin und dem inaktiven Penamecillin-1 $\beta$ -sulfoxid, wurden die Erfahrungen aus der Verfeinerung der Modellverbindung Thioprolin eingebracht. Einkristalle beider Verbindungen wurden am Meßplatz F1 des HASYLAB/DESY mit Synchrotronstrahlung bei 100 K untersucht. Die topologische Analyse der experimentellen Ladungsdichte zeigt, daß die Bindungsstärke der für die Wirksamkeit entscheidenden Amidbindung in beiden Ver-

bindungen gleich ist. Ein Einfluß dieser Größe auf die Wirksamkeit kann somit ausgeschlossen werden. Basierend auf den experimentellen elektrostatischen Potentialen der beiden Verbindungen kann jedoch ein Vorschlag für den Grund der so unterschiedlichen antibakteriellen Aktivität gemacht werden.

Das Fullerenderivat Dodekakis-(ethoxycarbonyl)-C<sub>60</sub> ist momentan mit über 100 Atomen in der asymmetrischen Einheit das größte Molekül, für das eine vollständige Ladungsdichtestudie mit anschließender topologischer Analyse durchgeführt wurde. Sowohl von experimenteller, als auch von theoretischer Seite stellt diese Studie eine große Herausforderung an die Methode dar. Die experimentelle Ladungsdichte basiert auf einem hochaufgelösten, bei 100 K mit Synchrotronstrahlung gemessenen Datensatz. Durch die topologische Analyse der Elektronendichte kann eine Korrelation zwischen der Bindungslänge von Kohlenstoff-Kohlenstoffbindungen und dem Wert der Elektronendichte am kritischen Punkt dieser Bindungen, einem Maß für die Bindungsstärke, gefunden werden. Ausgehend von diesem Zusammenhang kann die Stärke anderer C-C-Bindungen vorhergesagt werden.